

⑫ **EÜROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

⑰ Anmeldenummer: 83102133.2

⑤① Int. Cl.<sup>3</sup>: **C 07 C 11/02**  
**C 07 C 1/20**

⑱ Anmeldetag: 04.03.83

③① Priorität: 13.03.82 DE 3209223

④③ Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
21.09.83 Patentblatt 83/38

⑧④ Benannte Vertragsstaaten:  
BE DE FR GB NL

⑦① Anmelder: BASF Aktiengesellschaft  
Carl-Bosch-Strasse 38  
D-6700 Ludwigshafen(DE)

⑦② Erfinder: Lehnert, Rudi, Dr.  
Budapester Strasse 45  
D-6700 Ludwigshafen(DE)

⑦② Erfinder: Marosi, Laszlo, Dr.  
Leuschnerstrasse 32  
D-6700 Ludwigshafen(DE)

⑦② Erfinder: Leutner, Bernd, Dr.  
Taunusstrasse 17  
D-6710 Frankenthal(DE)

⑦② Erfinder: Schlimper, Hans-Ulrich, Dr.  
Im Erlich 74  
D-6720 Speyer(DE)

⑦② Erfinder: Schwarzmänn, Matthias, Dr.  
Carl-Bosch-Strasse 54  
D-6703 Limburgerhof(DE)

⑦② Erfinder: Stabenow, Joachim, Dr.  
Am Feldrain 22  
D-6940 Weinheim(DE)

⑤④ Verfahren zur Herstellung von Olefinen aus Methanol und/oder Dimethylether.

⑤⑦ Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Olefinen durch Umsetzung von Methanol und/oder Dimethylether an Zeolithkatalysatoren bei Temperaturen zwischen 300 und 600°C, bei dem die Umwandlung von Methanol und/oder Dimethylether in Olefine in mehreren hintereinandergeschalteten Reaktoren durchgeführt wird. Die Reaktoren sind entweder mit verschiedenen Katalysatoren beschickt oder die darin befindlichen Katalysatoren liegen in verschiedenen "Aktivitätszuständen" vor.

Anstelle von zwei Reaktoren kann man die Umsetzung auch in einem Etagenreaktor mit einer in den einzelnen Katalysatorschichten getrennt regelbaren Temperatur ausführen.

Verfahren zur Herstellung von Olefinen aus Methanol und/oder Dimethylether

Es ist bekannt, Olefine aus Methanol und/oder Dimethylether in Gegenwart von Zeolithkatalysator herzustellen.

05

In neuerer Zeit gewinnen Bemühungen, Methanol zur Herstellung von Olefinen zu verwenden, zunehmendes Interesse. Methanol kann man aus Kohle, durch Vergasung und Konvertierung mit Hilfe bekannter Verfahren ölonabhängig herstellen. Gelingt es, Methanol in technisch befriedigender Weise  
10 in niedere Olefine umzuwandeln, so können die heute angewendeten Weiterverarbeitungsverfahren der chemischen Industrie auch für die Verwendung von Kohle als Rohstoff beibehalten werden.

In den vergangenen Jahren sind daher mehrere Verfahren entwickelt worden,  
15 die die Umwandlung von Methanol und/oder Dimethylether in Olefine zum Gegenstand haben. Solche Verfahren sind beispielsweise beschrieben in der US-PS 4 049 573 und der DE-OS 28 28 835.

Ein gemeinsames Merkmal dieser bekannten Verfahren besteht darin, daß sie  
20 zur Umwandlung von Methanol in Olefine Zeolithkatalysatoren verwenden. Neben Unterschieden in der Art des verwendeten Zeolithkatalysators gibt es auch Unterschiede in der Reaktionsführung. So kann man die Umsetzung von Methanol und/oder Dimethylether mit oder ohne Anwendung eines Verdünnungsmittels, bei vollständigem oder nicht vollständigem Umsatz ausführen.  
25 ren. Die Umsetzung kann adiabatisch, isotherm aber auch in einem Wirbelbettreaktor durchgeführt werden. Die übliche Anordnung bei Festbettreaktoren besteht aus mehreren Reaktoren, die zueinander parallel geschaltet sind, wobei mindestens ein Reaktor regeneriert wird. Nicht umgesetzte Ausgangsprodukte, Methanol oder Dimethylether, können in den Prozeß zurückgeführt werden. In der US-PS 4 052 479 ist z.B. ein Verfahren zur  
30 Herstellung von Olefinen aus Methanol beschrieben, wobei Olefine zurückgeführt werden. In der US-PS 4 058 576 ist ein Zweistufenverfahren zur Umsetzung eines niederen Alkohols in Olefine oder Benzin beschrieben, wobei zwei hintereinandergeschaltete Reaktoren zum Einsatz kommen. Zur besseren Kontrolle der Reaktionswärme wird dabei im ersten Reaktor Methanol  
35 in Dimethylether umgewandelt und ein Teil der Reaktionswärme abgeführt.

Die bisherigen Erfahrungen zeigen, daß unter technisch realisierbaren Bedingungen die Prozeßführung, insbesondere aber die Herstellung von  
40 größeren Mengen von Ethylen, außerordentlich schwierig ist. Mit dotierten Katalysatoren kann man nur bei geringen Umsätzen an Methanol und/oder Gr/St

Dimethylether hohe Ethylenausbeuten erzielen. Methanol und Dimethylether müssen daher nach Abtrennung von den Kohlenwasserstoffen in den Prozeß zurückgeführt werden. An aktiven und hydrophilen Katalysatoren kann man zwar auch bei 100 %igem Umsatz hohe Ausbeuten an Ethylen erhalten, wenn  
05 man z.B. 25 %ige Methanollösung umsetzt. Die Wärmerückgewinnung und die relativ niedrige Standzeit der Katalysatoren, häufiges Regenerieren, verursachen aber zusätzliche Probleme. In den meisten der bisher bekannten Prozessen beobachtet man auch eine irreversible Alterung des Katalysators, dadurch entstehen hohe Katalysatorkosten.

10

Es wurde nun gefunden, daß man auch bei hohen Methanolkonzentrationen und vollständigem Umsatz Olefine in verbesserten Ausbeuten durch Umsetzung von Methanol und/oder Dimethylether an Zeolithkatalysatoren bei Temperaturen zwischen 300 und 600°C, Drücken von 0,1 bis 10 bar, einer stündlichen  
15 Katalysatorbelastung von 0,1 bis 100 g Methanol und/oder Dimethylether/g Katalysator, gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln erhält, wenn man die Umwandlung von Methanol und/oder Dimethylether in Olefine in mehreren hintereinandergeschalteten Reaktoren durchführt und dabei der zu mindestens 20 % aus Olefinen bestehende Produktstrom aus dem  
20 ersten Reaktor ohne Abtrennung eines Teiles des Reaktionsproduktes in einen zweiten Reaktor geführt und dort weiter zu einem Produkt mit einem höheren Olefinanteil umgesetzt wird, wobei die Reaktoren entweder mit verschiedenen Katalysatoren beschickt sind und/oder die darin befindlichen Katalysatoren in verschiedenen "Aktivitätszuständen" vorliegen und  
25 durch die Reaktionsführung mindestens zum Teil verschiedene voneinander entkoppelte Reaktionsschritte der Gesamtumsetzung katalysieren.

Die Umsetzung von Methanol in Dimethylether in einem vorgeschalteten Reaktor wird im Sinne der Erfindung nicht als eine getrennte Stufe angesehen,  
30 da der Produktstrom aus dem ersten Reaktor gemäß der vorliegenden Erfindung mindestens 20 % Olefine enthalten soll.

Eine besondere Ausführungsform besteht darin, daß man einen Etagenreaktor mit einer in den einzelnen Katalysatorschichten getrennt regelbaren Temperatur verwendet, wobei mindestens eine der Katalysatorschichten mit einem  
35 von den anderen Schichten verschiedenen Katalysator beschichtet ist oder in einem anderen "Aktivitätszustand" vorliegt. Man kann aber auch mehrere hintereinandergeschaltete Wirbelschichtreaktoren oder einen mehrstufigen Wirbelschichtreaktor verwenden, wobei diese Reaktoren entweder mit ver-  
40 schiedenen Katalysatoren beschickt sind oder die darin befindlichen Katalysatoren sich in unterschiedlichen "Aktivitätszuständen" befinden. Ebenso kann man mehrere hintereinandergeschaltete Wanderbettreaktoren oder einen mehrstufigen Wanderbettreaktor verwenden, die mit verschiedenen

Katalysatoren beschickt sind oder die darin befindlichen Katalysatoren sich in verschiedenen "Aktivitätszuständen" befinden.

Es war überraschend, daß durch die erfindungsgemäße Reaktionsführung bei  
05 100 % Umsatz auch bei Verwendung von 50 bis 100 %igen Methanollösungen im Vergleich zu einem einstufigen Verfahren erhöhte Olefine -, insbesondere erhöhte Ethylenausbeuten, erhalten werden.

Ein besonderer Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin,  
10 daß durch Hintereinanderschalten von mehreren Katalysatoren in den einzelnen Reaktionszonen die verschiedenen Reaktionen der Gesamtumsetzung, z.B. Bildung von Ethylen, Homologisierung von Olefinen oder Krackung von Olefinen und Paraffinen entkoppelt werden können und mit Hilfe von verschiedenen Katalysatoren oder durch verschiedene "Aktivitätszustände" des-  
15 selben Katalysators vorteilhafter in die gewünschte Richtung zu lenken sind als es durch die Verwendung eines einzelnen, auch multifunktionalen, Katalysators in nur einem Reaktor möglich ist. Die Steuerung der Katalyse wird erheblich erleichtert.

20 Unter "Aktivitätszuständen" des Katalysators im Sinne der Erfindung versteht man z.B. die Aktivität in Abhängigkeit von der Temperatur, dem Kohlegehalt oder der Verdünnung mit amorphen Bindemitteln. Es können auch dotierte oder ionenausgetauschte Formen desselben Zeolithtyps zum Einsatz kommen, oder auch verschiedene Zeolithtypen. Besonders geeignet sind  
25 Alumino- und Borosilikatzeolithe vom Pentasil-Typ oder vom Typ ZSM-34.

Geeignete Reaktortypen zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens sind z.B. der "Etagenreaktor" mit getrennt regelbarer Temperatur in den einzelnen Katalysatorzonen oder mehrere hintereinandergeschaltete Wirbel-  
30 schicht-, Wanderbett- oder adiabatische oder isotherme Reaktoren. Die Reaktoren können, wie z.B. im Etagenreaktor, als Reaktoren mit getrennten Heizungssystemen oder getrennten Katalysatorzonen ausgestaltet sein. Erfindungswesentlich ist das Vorliegen von verschiedenen Katalysatorzonen mit unterschiedlicher Aktivität. Diese unterschiedliche Aktivität kann  
35 durch den Einsatz von verschiedenen Katalysatoren und/oder durch verschiedene "Aktivitätszustände" desselben Katalysators erreicht werden.

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren wird bei zwei- oder mehrstufiger Arbeitsweise mit verschiedenen Temperatureinstellungen gearbeitet, vorzugs-  
40 weise wird bei z.B. einer zweistufigen Anordnung der genannten Reaktortypen bzw. der Ausführung in zwei Reaktoren in erster Stufe bzw. Reaktor bei Temperaturen von 200 bis 400°C, insbesondere 280 bis 350°C, in zwei-

ter Stufe bzw. im zweiten Reaktor bei Temperaturen von 450 bis 600°, insbesondere von 530 bis 580°C gearbeitet.

Es sind auch Kombinationen aus diesen Reaktorsystemen anwendbar, die eine  
05 Korrektur des Temperaturprofils der exothermen Methanolumwandlung im Vergleich zu der adiabatischen oder isothermen Fahrweise ermöglichen. Von bekannten Reaktoranordnungen, in den sich entlang der Katalysatorschicht beim Durchgang der Stoffe auch von sich aus unterschiedliche "Aktivitätszustände" des Katalysators ausbilden können, unterscheidet sich die erfindungsgemäße Anordnung durch die getrennte regelbare Anordnung von Schichten mit Steuermöglichkeit in denen sich die "Aktivitätszustände" des Katalysators ausbilden bzw. durch eine Anordnung von verschiedenen Katalysatoren in diesen getrennten Schichten.  
10

15 Man kann auch mehr als zwei Reaktoren ohne Abtrennung eines des Teiles des Produktstromes hintereinanderschalten, wenn es die spezielle Reaktionsführung erforderlich macht.

Eine Auftrennung des Produktstromes wird vorteilhafterweise erst nach dem  
20 vollständigen Umsatz von Methanol und/oder Dimethylether vorgenommen. Nach der Auftrennung kann man die Olefine in an sich bekannter Weise weiterverarbeiten, z.B. durch "steam-cracken" eines Teils der Produkte, Homologisierung oder Cracken von Olefinen an zeolithischen oder anderen Katalysatoren oder beispielsweise die Umwandlung von Propylen in Ethylen  
25 und Buten (Triolefinprozeß) oder nach anderen Weiterverarbeitungsverfahren. Es ist auch möglich, einen Teil der Reaktionsprodukte, z.B. Propylen, Butene oder  $C_5^+$ -Kohlenwasserstoffe vorzugsweise in eine Zone des Katalysatorsystems zurückzuführen, in der nur noch eine stark verminderte Konzentration an Methanol und/oder Dimethylether vorliegt. Es kann sich  
30 auch als vorteilhaft erweisen, in bestimmte Zonen des Katalysatorsystems Wasserdampf oder andere Verdünnungsmittel oder z.B. zwecks Konstanthaltung des Produktspektrums Methanol oder Dimethylether zusätzlich zu dem Produktstrom einzuleiten.

35 Eine vorteilhafte Ausführungsform besteht z.B. darin, im 1. Reaktor bei unvollständigem Umsatz hohe Ethylenausbeuten zu erzielen und den aus dem ersten Reaktor austretenden Produktstrom in einem weiteren Reaktor oder Reaktionszone, der einen Katalysator mit einer unterschiedlichen Aktivität enthält, vollständig umzusetzen. Man kann mit Hilfe von Bor, Magnesium,  
40 sium, Phosphor und Siliciumoxid dotierten Zeolithen vom Pentasiltyp hohe Ethylenausbeuten erzielen, wenn die Umsetzung bei tiefen Temperaturen und Umsätzen von kleiner als 100 % durchgeführt wird. Auch an Zeolithen vom Typ ZSM-34 und/oder Wasserstoffzeolithen vom Pentasiltyp kann man hohe

Ethylenausbeuten erzielen, wobei am Anfang der Reaktion nur kleine Umsätze an Methanol und/oder Dimethylether zu erzielen sind oder der Umsatz bereits nach kurzer Zeit so stark zurückgeht, daß bei vollständiger Umsetzung nur kurze Laufzeiten des Katalysators zu erzielen sind. Die Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens wird an Hand der nachstehenden Beispiele erläutert, die die verschiedenen Varianten der Reaktionsführung veranschaulichen. In Beispiel 1 wird gezeigt, daß mit Hilfe des erfindungsgemäßen Verfahrens durch Einleiten des Produktstromes aus dem 1. Reaktor in eine weitere Katalysatorzone unter Mehrung des relativen Olfinateil ein vollständiger Umsatz an Methanol und Dimethylether bei verlängerter Laufzeit zwischen zwei Regenerierungen möglich ist.

#### Beispiel 1

Der erste Reaktor ist ein Etagenreaktor mit drei Katalysatorzonen. Die Zonen enthalten je 7 g eines Zeoliths vom Pentasiltyp mit einem  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ -Molverhältnis von 40 in Form von 3-mm-Pillen. Die Gaseingangstemperatur in die einzelnen Reaktionszonen beträgt einheitlich  $330^\circ\text{C}$ . Die Beschickung ist eine 50 %ige wäßrige Methanollösung, die Belastung 8,1 g  $\text{CH}_3\text{OH/g}$  Zeolith/h. Die Umsetzung wird bei 1,14 bar durchgeführt.

Die Zusammensetzung der erhaltenen Reaktionsprodukte ist in Tabelle 1 dargestellt. Man erkennt, daß bereits nach kurzer Laufzeit der Umsatz nachläßt und das Produktgas größere Mengen Dimethylether aufweist. Reaktor 2 ist ein adiabatischer Reaktor, der mit 30 g Borsilikatzeolithen vom Pentasil-Typ beschickt ist. Das  $\text{SiO}_2/\text{B}_2\text{O}_3$ -Molverhältnis im Zeolithen beträgt 34. Dieser Katalysator liegt in Form von 3-mm-Strängen vor (Bindemittel  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , Gewichtsverhältnis Zeolith: Bindemittel = 60 : 40).

Der aus dem ersten Reaktor austretende Produktstrom wird auf  $500^\circ\text{C}$  aufgeheizt und in den 2. Reaktor eingeleitet. Die Zusammensetzung der erhaltenen Produkte ist in Tabelle 1 dargestellt.

Man erkennt, daß der Umsatz an Methanol und Dimethylether 100 % beträgt und der Produktstrom einen erhöhten Olefinanteil aufweist. Die Selektivität zu Ethylen ist größer 20 Gew.-%, bezogen auf das eingesetzte  $\text{CH}_2$ .

#### Beispiel 2

Der erste Reaktor besteht aus einem Etagenreaktor mit 4 Katalysatorzonen. Die Zonen enthalten je 7 g eines Zeolithen vom Pentasiltyp mit einem  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ -Molverhältnis von 40 in Form von 3 mm-Pillen. Die Gaseingangstemperatur in die einzelnen Reaktionszonen beträgt einheitlich  $300^\circ\text{C}$ . Die

Beschickung ist Rohmethanol (83 % Methanol), die Belastung beträgt 10 g  $\text{CH}_3\text{OH/g}$  Zeolith/h. Die Umsetzung wird 1.2 bar durchgeführt.

Der Produktstrom wird auf  $500^\circ\text{C}$  aufgeheizt und in einen 2. Reaktor geleitet. Der 2. Reaktor ist mit 30 g eines Borsilikatzeolithen vom Pentasil-Typ beschickt. Das  $\text{SiO}_2/\text{B}_2\text{O}_3$ -Molverhältnis im Zeolithen beträgt 34. Dieser Katalysator liegt in Form von 3 mm Strängen vor.

Aus Tabelle 1 ist die Ethen- und Propanausbeute zu ersehen. Es ist zu erkennen, daß der Anteil an  $\text{C}_2$ - $\text{C}_3$  Olefinen beim Durchgang durch den 2. Reaktor steigt und der Anteil an flüssigen Kohlenwasserstoffen abnimmt.

### Beispiel 3

Der erste Reaktor ist ein Wirbelreaktor gefüllt mit 75 g eines Katalysators auf der Grundlage eines Aluminosilikatzeolithen des Pentasiltyps mit einem  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ -Molverhältnis von 40. Der Katalysator wurde mit  $\text{Al}_2\text{O}_3$  konfektioniert und die Kornfraktion von 0,1 bis 0,5 mm benutzt. Die Betttemperatur betrug 270 bis  $300^\circ\text{C}$ . Die Reaktionslösung ist Rohmethanol (83 % Methanol), die Belastung bezogen auf den Aluminosilikatzeolithen betrug  $3,5 \text{ h}^{-1}$ . Die Umsetzung wird bei 1,1 bar durchgeführt.

Die Zusammensetzung der erhaltenen Reaktionsprodukte ist in Tabelle 2, Spalte 2 dargestellt. Man erkennt, daß der Umsatz unvollständig ist. Der Produktstrom aus Reaktor 1 wird aufgeheizt auf 500 bis  $560^\circ\text{C}$  in einen zweiten Wirbelreaktor eingeleitet.

Der zweite Wirbelreaktor ist mit 60 g eines Borsilikatzeolithen des Pentasiltyps beschickt. Das  $\text{SiO}_2/\text{B}_2\text{O}_3$ -Molverhältnis beträgt 40. Der Zeolith wurde mit  $\text{Al}_2\text{O}_3$  konfektioniert. Die Kornfraktion lag zwischen 0,1 bis 0,5 mm. Die Zusammensetzung der erhaltenen Produkte ist in Tabelle 2, Spalte 4 und 5 zu ersehen.

In Tabelle 2, Spalte 3 ist das Produktspektrum abgebildet, das der Katalysator im 2. Wirbelbett unter den erfindungsgemäßen Bedingungen mit Rohmethanol liefert. Man erkennt, daß der Umsatz von Methanol und Dimethylether 100 % beträgt und der Produktstrom einen erhöhten Olefinanteil aufweist. Die Selektivität zu Ethen beträgt größer als 20 % m/m bezogen auf das eingesetzte  $\text{CH}_2$ .

Durch geeignete Temperaturführung können mit dieser Kombination auch selektiv flüssige Kohlenwasserstoffe hergestellt werden wie in Tabelle 2, Spalte 6 zu erkennen ist.

Tabelle 1

Katalysator	Alumosilikat- zeolith	Stufe 1: Alumosilikat- zeolith Stufe 2: Borosilikat- zeolith	Alumosilikat- zeolith	Stufe 1: Alumosilikat- zeolith Stufe 2: Borosilikat- zeolith
Methanol:	50	50	83	83
Belastung ( $\text{h}^{-1}$ )	8	8	10	10
Eingangstemp. ( $^{\circ}\text{C}$ )	330	330/500	300	300/500
Selektivität (% m/m) bezogen auf eingesetztes $\text{C}_{11}\text{H}_2$				
Ethen	23	25		22
Propen	17	24	34	38
$\Sigma \text{C}_4$	20	20	16	15
$\Sigma \text{C}_5$	36	16	30	15
Laufzeit (h)	3	10	5	8
Umsatz	100%	50-60 %	100 %	100 %



Tabelle 2

Katalysator	Alumo- silikat- katalysator	Alumo- silikat- katalysator	Boro- silikat- katalysator	R 1 Alumosilikatzeolith R 2 Boro-silikatzeolith	
Methanol	83	83	83	83	83
Belastung ( $h^{-1}$ ) :	3,5	3,5	3,5	3,5	3,5
Eingangstemp. ( $^{\circ}C$ ):	400	270-300 erf. Bed.	500	300/500	350/460
$CH_4$	1,8	1,0	1,4	1,0	1,0
Ethen	16,9	24,0	9,0	21,0	7,0
Ethan	0,5	0,2	0,2	-	-
Propen	15,1	17,0	20,0	26,0	8,0
Propan	11,2	3,5	4,0	5,0	11,0
$C_4$	20,3	11,0	20,5	17,0	24,0
$C_5^+$ Gas	14,3	11,0	12,0	14,0	13,0
(b)	11,5	4,0	24,5	16,0	36,0
Umsatz :	100 %	50-70 %	100 %	100 %	100 %

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Olefinen durch Umsetzung von Methanol und/der Dimethylether an Zeolithkatalysatoren bei Temperaturen zwischen 300 und 600°C, Drücken von 0,1 bis 10 bar, einer stündlichen Katalysatorbelastung von 0,1 bis 100 g Methanol und/oder Dimethylether/g Katalysator, gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln, dadurch gekennzeichnet, daß die Umwandlung von Methanol und/oder Dimethylether in Olefine in mehreren hintereinandergeschalteten Reaktoren durchgeführt wird und dabei der zu mindestens 20 % aus Olefinen bestehende Produktstrom aus dem ersten Reaktor ohne Abtrennung eines Teiles des Reaktorproduktes in einen zweiten Reaktor führt und dort weiter zu einem Produkt mit einem erhöhten Olefinanteil umgesetzt wird, wobei die Reaktoren entweder mit verschiedenen Katalysatoren beschickt sind und/oder die darin befindlichen Katalysatoren in verschiedenen "Aktivitätszuständen" vorliegen und durch die Reaktionsführung mindestens zum Teil verschiedene voneinander entkoppelte Reaktionsschritte der Gesamtumsetzung katalysieren.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man anstelle von 2 Reaktoren die Umsetzung in einem Etagenreaktor mit einer in den einzelnen Katalysatorschichten getrennt regelbaren Temperatur ausführt, wobei mindestens eine der Katalysatorschichten mit einem von den anderen Schichten verschiedenen Katalysator beschickt ist oder in einem anderen "Aktivitätszustand" vorliegt.
3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere hintereinandergeschaltete Wirbelschichtreaktoren oder ein mehrstufiger Wirbelschichtreaktor verwendet werden, wobei diese Reaktoren entweder mit verschiedenen Katalysatoren beschickt sind oder die darin befindlichen Katalysatoren sich in unterschiedlichen "Aktivitätszuständen" befinden.
4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere hintereinandergeschaltete Wanderbettreaktoren oder ein mehrstufiger Wanderbettreaktor verwendet werden, wobei diese Reaktoren entweder mit verschiedenen Katalysatoren beschickt sind oder die darin befindlichen Katalysatoren sich in unterschiedlichen "Aktivitätszuständen" befinden.



Europäisches  
Patentamt

# EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

0088965  
Nummer der Anmeldung

EP 83 10 2133

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl. <sup>3</sup> )
A	EP-A-0 016 405 (BASF)  * Seite 2 *		C 07 C 11/02 C 07 C 1/20
A,D	--- US-A-4 058 576 (CHANG et al.)  -----		
			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl. <sup>3</sup> )
			C 07 C 1/00
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.			
Recherchenort DEN HAAG		Abschlußdatum der Recherche 17-05-1983	Prüfer VAN GEYT J.J.A.
<div><div><p>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTEN</p><p>X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet</p><p>Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie</p><p>A : technologischer Hintergrund</p><p>O : nichtschriftliche Offenbarung</p><p>P : Zwischenliteratur</p><p>T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze</p></div><div><p>E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</p><p>D : in der Anmeldung angeführtes Dokument</p><p>L : aus andern Gründen angeführtes Dokument</p><p>&amp; : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</p></div></div>			